

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-277133  
 (43)Date of publication of application : 06.10.2000

(51)Int.Cl. H01M 8/02  
 C23C 8/64

(21)Application number : 11-080879

(71)Applicant : NISSHIN STEEL CO LTD  
 TOYOTA MOTOR CORP

(22)Date of filing : 25.03.1999

(72)Inventor : MATSUNO MASANORI  
 MORITA YOSHIKAZU  
 SAITO MINORU  
 TAKAHASHI TAKESHI  
 YATSUGAMI YUICHI

## (54) SEPARATOR FOR LOW TEMPERATURE TYPE FUEL CELL

### (57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide a separator for a low temperature type fuel cell of improved conductivity by dispersing and depositing a carbon powder on a ferrite system stainless steel base material of excellent acid resistance.

**SOLUTION:** This separator has a base material 13 of a ferrite system stainless steel and a carbon particle 14 such as a carbon black or graphite powder dispersed and attached on the base material surface in an island shape. The carbon particle 14 is preferably jointed on the base material surface through a diffused layer. The separator has low contact resistance. Therefore, Joule heat to be a heat loss when a plurality of cells is stacked can be suppressed.



### LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 26.08.2003

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3645118

[Date of registration] 10.02.2005

[Number of appeal against examiner's decision]

of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's  
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号  
特開2000-277133

(P2000-277133A)

(43)公開日 平成12年10月6日 (2000.10.6)

(51)Int.Cl.<sup>7</sup>

H 01 M 8/02  
C 23 C 8/64

識別記号

F I

テーマコード<sup>\*</sup> (参考)

H 01 M 8/02  
C 23 C 8/64

Y 5 H 0 2 6

審査請求 未請求 請求項の数 3 O L (全 5 頁)

(21)出願番号

特願平11-80879

(22)出願日

平成11年3月25日 (1999.3.25)

(71)出願人 000004581

日新製鋼株式会社

東京都千代田区丸の内3丁目4番1号

(71)出願人 000003207

トヨタ自動車株式会社

愛知県豊田市トヨタ町1番地

(72)発明者 松野 雅典

大阪府堺市石津西町5番地 日新製鋼株式会社技術研究所内

(74)代理人 100092392

弁理士 小倉 亘

最終頁に続く

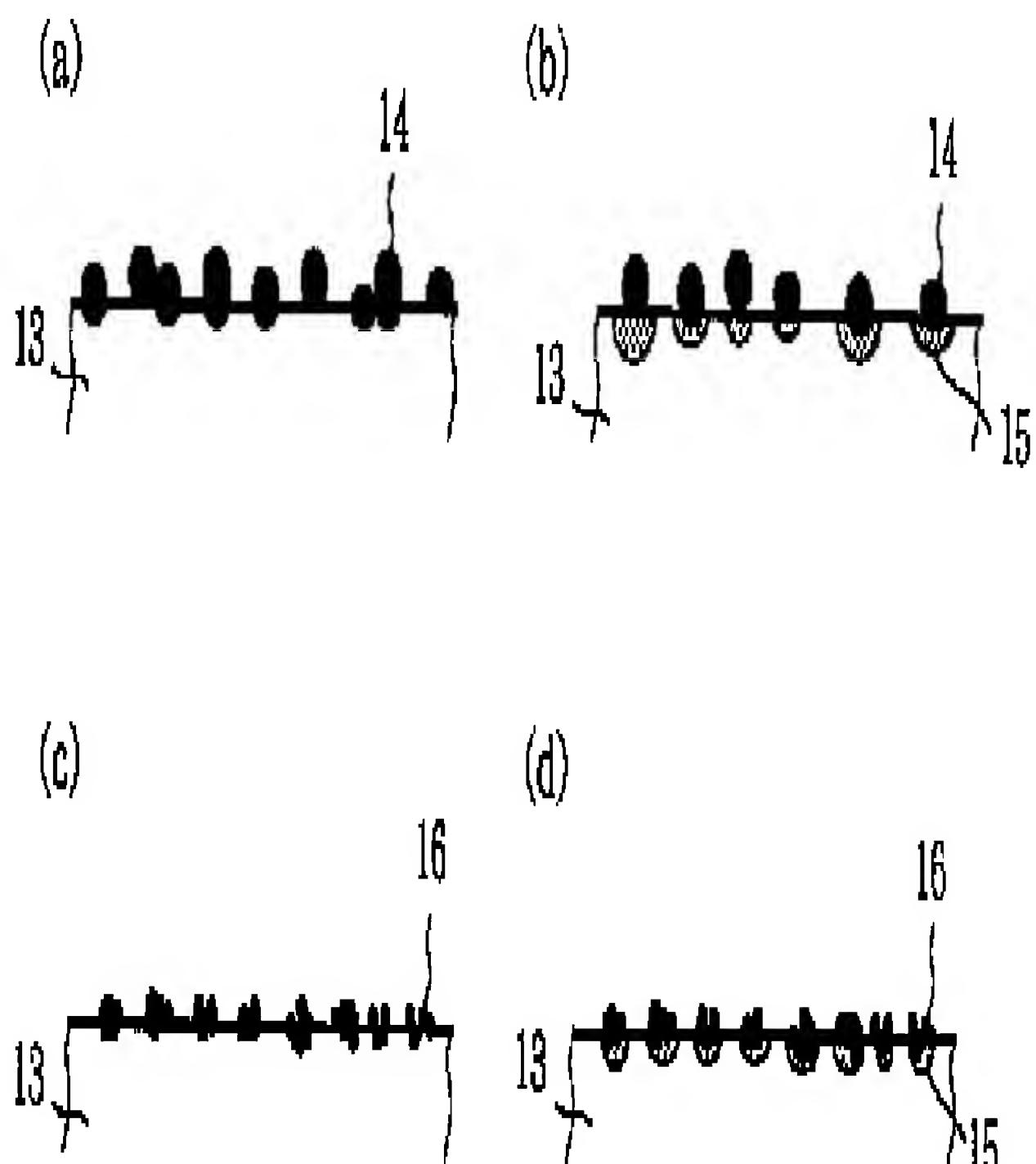
(54)【発明の名称】 低温型燃料電池用セパレータ

(57)【要約】

【目的】 耐酸性の良好なフェライト系ステンレス鋼基材にカーボン粉末を分散付着することにより、導電性を改善した低温型燃料電池用セパレータを得る。

【構成】 このセパレータは、フェライト系ステンレス鋼を基材13とし、カーボンブラック、黒鉛粉末等のカーボン粒子を基材表面に島状に分散付着させている。カーボン粒子は、拡散層を介して基材表面に接合されていることが好ましい。

【効果】 接触抵抗が低いセパレータであるため、多数のセルを積層した場合にも熱損失となるジュール熱の発生が抑えられる。



## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 フェライト系ステンレス鋼を基材とし、基材表面にカーボン粒子を島状に分散付着させている低温型燃料電池用セパレータ。

【請求項 2】 カーボン粒子が拡散層を介して基材表面に接合されている請求項 1 記載の低温型燃料電池用セパレータ。

【請求項 3】 カーボン粒子がカーボンブラック又は黒鉛粉末である請求項 1 又は 2 記載の低温型燃料電池用セパレータ。

## 【発明の詳細な説明】

### 【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、固体高分子型燃料電池を始めとする低温で稼動する燃料電池のセパレータに関する。

### 【0002】

【従来の技術】 燃料電池のなかでも、固体高分子型の燃料電池は、100°C以下の温度で動作可能であり、短時間で起動する長所を備えている。また、各部材が固体からなるため、構造が簡単でメンテナンスが容易であり、振動や衝撃に曝される用途にも適用できる。更に、出力密度が高いため小型化に適し、燃料効率が高く、騒音が小さい等の長所を備えている。これらの長所から、電気自動車搭載用としての用途が検討されている。ガソリン自動車と同等の走行距離を出せる燃料電池を自動車に搭載すると、NO<sub>x</sub>、SO<sub>x</sub> の発生がほとんどなく、CO<sub>2</sub> の発生が半減する等のように環境に対して非常にクリーンなものになる。固体高分子型燃料電池は、分子中にプロトン交換基をもつ固体高分子樹脂膜がプロトン伝導性電解質として機能することを利用したものであり、他の形式の燃料電池と同様に固体高分子膜の一側に水素等の燃料ガスを流し、他側に空気等の酸化性ガスを流す構造になっている。

【0003】 具体的には、固体高分子膜 1 は、図 1 に示すように両側に空気電極 2 及び水素電極 3 が接合され、それぞれガスケット 4 を介してセパレータ 5 を対向させている。空気電極 2 側のセパレータ 5 には空気供給口 6、空気排出口 7 が形成され、水素電極 3 側のセパレータ 5 には水素供給口 8、水素排出口 9 が形成されている。セパレータ 5 には、水素 g 及び酸素又は空気 o の導通及び均一分配のため、水素 g 及び酸素又は空気 o の流动方向に延びる複数の溝 10 が形成されている。また、発電時に発熱があるため、給水口 11 から送り込んだ冷却水 w をセパレータ 5 の内部に循環させた後、排水口 12 から排出させる水冷機構をセパレータ 5 に内蔵させている。水素供給口 8 から水素電極 3 とセパレータ 5 との間隙に送り込まれた水素 g は、電子を放出したプロトンとなって固体高分子膜 1 を透過し、空気電極 2 側で電子を受け、空気電極 2 とセパレータ 5 との間隙を通過する酸素又は空気 o によって燃焼する。そこで、空気電極 2

及び水素電極 3 とに接觸する各セパレータ 5、5 から電流を取り出し、負荷を接続するとき、電力を取り出すことができる。

【0004】 燃料電池は、1 セル当りの発電量が極く僅かである。そこで、図 1 (b) に示すようにセパレータ 5、5 で挟まれた固体高分子膜を 1 単位とし、複数のセルを積層することによって取り出しが可能な電力量を大きくしている。多数のセルを積層した構造では、空気電極 2 及び水素電極 3 と各セパレータ 5、5 との接觸抵抗が発電効率に大きな影響を及ぼす。発電効率を向上させるためには、導電性が良好で、空気電極 2 及び水素電極 3 との接觸抵抗の低いセパレータが要求され、リン酸塩型燃料電池と同様に黒鉛質のセパレータが使用されている。黒鉛質のセパレータは、黒鉛ブロックを所定形状に切り出し、切削加工によって各種の孔や溝を形成している。そのため、材料費や加工費が高く、全体として燃料電池の価格を高騰させると共に、生産性を低下させる原因になっている。しかも、材質的に脆い黒鉛でできたセパレータでは、振動や衝撃が加えられると破損する虞れが大きい。そこで、プレス加工やパンチング加工等によって金属板からセパレータを作ることが特開平 8-180883 号公報で提案されている。

### 【0005】

【発明が解決しようとする課題】 しかし、酸素又は空気 o が通過する空気電極 2 側は、酸性度が pH 2 ~ 3 の酸性雰囲気にある。このような強酸性雰囲気に耐え、しかもセパレータに要求される特性を満足する金属材料は、これまでのところ実用化されていない。たとえば、強酸に耐える金属材料としてステンレス鋼等の耐酸性材料が考えられる。これらの材料は、表面に形成した強固な不動態皮膜によって耐酸性を呈するものであるが、不動態皮膜によって表面抵抗や接觸抵抗が高くなる。接觸抵抗が高くなると、接觸部分で多量のジュール熱が発生し、大きな熱損失となり、燃料電池の発電効率を低下させる。他の金属板でも、接觸抵抗を高くする酸化膜が常に存在するものがほとんどである。

【0006】 表面に酸化皮膜や不動態皮膜を形成しない金属材料としては、Au が知られている。Au は、酸性雰囲気にも耐えるが、非常に高価な材料であるため燃料電池のセパレータ材としては実用的でない。Pt は、酸化皮膜や不動態皮膜が形成されにくい金属材料であり、酸性雰囲気にも耐えるが、Au と同様に非常に高価な材料であるため実用的でない。本発明は、このような問題を解消すべく案出されたものであり、カーボン粒子をステンレス鋼表面に島状に分布させることにより、耐酸性を確保しながら良好な導電性及び低い接觸抵抗を示すセパレータを提供することを目的とする。

### 【0007】

【課題を解決するための手段】 本発明の低温型燃料電池用セパレータは、その目的を達成するため、基材として

耐酸性に優れたフェライト系ステンレス鋼を使用し、基材表面にカーボン粒子を島状に分散付着させていることを特徴とする。カーボン粒子を分散付着した後のステンレス鋼基材を加熱処理すると、カーボン粒子と基材との界面にある基材の酸化皮膜が部分的に破壊され、カーボンの拡散によりステンレス鋼基材の表面に拡散層が形成される。この場合、カーボンが拡散層を介して基材表面に接合されるため、密着性及び耐剥離性が一層向上し、粒子と基材との間の抵抗が低減される。カーボン粒子としては、カーボンブラック又は黒鉛粉末が使用される。

#### 【0008】

【作用】本発明の低温型燃料電池用セパレータは、カーボンブラック、黒鉛粉末等のカーボン粒子をフェライト系ステンレス鋼基材の表面に島状に分布させている。フェライト系ステンレス鋼を基材としているので、カーボン粒子が付着していない部分では、表面に形成される酸化クロムの不動態膜が強固であるため、使用環境下で十分な耐酸性をもつ。一方、カーボンブラック及び黒鉛粉末は、純度が高く、不純物に起因する酸化膜や他の皮膜を生成させる等の問題がない。また、高純度であることから、耐酸性にも優れ、燃料電池の固体高分子膜を汚染することもない。この点、石油、石炭等の未燃焼生成物である煤やタールでは、多量に含まれている不純物に起因して酸化膜や他の皮膜が生成し易い。更に、不純物によって固体高分子膜が汚染され、燃料電池自体の性能を低下させる虞れもある。カーボン粒子自体は、表面に酸化膜を生成する事なく、優れた耐酸性を示し、主としてカーボン系材料でできた空気電極及び水素電極に対する馴染みも良い。また、空気電極及び水素電極がセパレータと接触する際、基材表面からカーボン粒子が突出しているため接触部分に圧力が集中すること、カーボンは崩壊しやすいため接触部分で粒子が押しつぶされ十分な接触面積が確保できること等により、接触抵抗を一層低下させる。そのため、多数のセルを積層した構造の燃料電池であっても、ジユール熱が少なく、発電効率が向上する。

#### 【0009】

【実施の形態】黒鉛粒子は、カーボンブラックに比較して粒径が大きく、図2 (a) に示すようにステンレス鋼基材13の表面に個々の黒鉛粒子14を分散付着させることができる。たとえば、黒鉛粉末を付着させたフェルト状の布又はフェルト状の布を巻き付けたロールをステンレス鋼基材13に擦り付けることによって、黒鉛粒子14が分散付着する。カーボンブラックの場合も、同様な方法によってステンレス鋼基材13に付着される。黒鉛粒子14が付着したステンレス鋼基材13を加熱し、ステンレス鋼基材13と黒鉛粒子14との間に拡散層15を形成すると(図2b)、ステンレス鋼基材13に対する黒鉛粒子14の密着性が改善される。密着性が向上した黒鉛粒子14は、基材表面がダイスで擦られるプレ

ス加工、コルゲート加工等によっても基材表面から脱落することがない。また、拡散層15を介してステンレス鋼基材13と確実に導通が取れるため、接触抵抗も一層低下する。

【0010】カーボンブラックは、通常、粒径が1μm以下の微粒子であり、凝集し易い。この場合には、図2(c)に示すようにカーボンブラックの凝集物16としてステンレス鋼基材13の表面に付着させる。凝集物16は、黒鉛粒子14と同様に分散付着させた後で加熱拡散することにより、ステンレス鋼基材13との間に拡散層15を形成させ、ステンレス鋼基材13に対する密着性を向上させることができる。カーボン粒子の分散付着に先立って、ステンレス鋼基材13の表面を適度の粗さに研磨しても密着性の向上に有効である。黒鉛粒子14及びカーボンブラックの凝集物16は、図2に示すようにステンレス鋼基材13の表面に島状に分布させることができが好適である。すなわち、島状に分布させることにより、曲げ、伸び等の変形を伴う加工時に生じる応力が黒鉛粒子14やカーボンブラックの凝集物16に蓄積されないため、ステンレス鋼基材13から黒鉛粒子14やカーボンブラックの凝集物16が脱落し或いは剥離することが防止される。逆に、ステンレス鋼基材13の全面に黒鉛粒子14やカーボンブラックの凝集物16をコーティングし、それぞれの粒子が結合しているような場合には、加工時に応力の逃げ場がなく界面に蓄積されるため、黒鉛粒子14やカーボンブラックの凝集物16が剥離・脱落し易くなる。

【0011】カーボン系粒子を分散付着させる基材としては、耐酸性に優れたフェライト系ステンレス鋼が使用される。基材の要求特性としては、酸化性雰囲気の酸による腐食に耐えることが必要である。Cr濃度20重量%以上のフェライト系ステンレス鋼の腐食速度は、セパレータの使用環境下で、一旦、不動態皮膜が形成されると急激に減少し、十分低い腐食速度をもつ。使用可能なフェライト系ステンレス鋼は、20~35重量%のCr濃度をもつ。たとえば、C:0.001~0.3重量%, Si:0.02~5.0重量%, Mn:0.5~5.0重量%, Cr:20~35重量%を含む組成をもつものが使用される。

【0012】基材のCr濃度が20重量%未満では、酸化性の酸による腐食雰囲気中の耐酸性が低い。逆に、35重量%を超えるCr濃度では、ステンレス鋼の変形抵抗が大きく、プレス加工等の加工が困難になる。基材の耐酸性を更に高めるため、Ni, Mo, Cu, N等の1種又は2種以上を添加しても良い。すなわち、単位面積当たりの電流値を上げて出力密度を増加させる燃料電池では、pHが低下することから、より耐酸性に優れたステンレス鋼基材が必要になる。そこで、Ni:0.1~4重量%, Mo:0.2~7重量%, Cu:0.1~5重量%, N:0.02~0.5重量%の1種又は2種以

上を添加することにより耐酸性を改善する。また、場合によっては、少量の Ti, Nb, Zr 等の添加によっても耐酸性を高めることができる。

【0013】

表1：実施例で使用したフェライト系ステンレス鋼の種類

鋼種 記号	合金成分及び含有量 (重量%, 残部は、Fe 及び不純物)									
	C	Si	Mn	Ni	Cr	Mo	Cu	N	Nb	Ti
A	0.01	0.22	0.21	—	28.9	1.9	—	—	0.15	0.2
B	0.01	0.28	0.19	—	22.8	1.1	—	—	0.32	0.18

【0015】カーボンブラック又は黒鉛粉末をまぶしたフェルトでステンレス鋼板の表面を摺擦し、付着量 5 ~ 10 mg/m<sup>2</sup> でカーボンブラック又は黒鉛粉末を分散付着させた。カーボンブラックは、平均粒径が小さいことから粒子の凝集物 16 としてステンレス鋼基材 13 の表面に分散付着していた。黒鉛粉末では凝集を生じることなく、個々の黒鉛粒子 14 としてステンレス鋼基材 13 の表面に分散付着していた。次いで、700°C に 2 秒間加熱することにより、カーボンブラックの凝集物 16 又は黒鉛粒子 14 とステンレス鋼基材 13 との間に拡散層 15 を生成させた。なお、熱処理条件は、基材バルクにまでカーボンが拡散しないように短めに設定した。

【0016】カーボン粉末を分散付着させ、加熱処理したステンレス鋼基材 13 について、接触抵抗及び耐酸性を調査した。接触抵抗に関しては、荷重 10 kg/cm<sup>2</sup> でステンレス鋼基材 13 にカーボン電極材を接触させ、両者の間の接触抵抗を測定した。耐酸性に関して

【実施例】基材として、表 1 に示す成分・組成をもつステンレス鋼板を使用し、平均粒径 0.05 μm のカーボンブラック及び平均粒径 3 μm の黒鉛粉末を使用した。

【0014】

は、ステンレス鋼基材 13 を浴温 90°C, pH 2 の硫酸水溶液に 168 時間浸漬し、腐食減量を測定した。比較のため、カーボン粉末を付着させないサンプルについて、同様に接触抵抗及び耐酸性を調査した。カーボン粉末を分散付着させ、更に加熱処理により拡散層 15 を形成したステンレス鋼基材 13 の接触抵抗及び耐酸性を表 2 に示す。

【0017】表 2 から明らかなように、カーボン粉末を分散付着し、さらに加熱処理により拡散層 15 を形成した試験番号 1 ~ 4 の基材は何れも接触抵抗が低く、耐酸性に優れており、燃料電池用セパレータに要求される特性を備えていることが判る。これに対し、カーボン系粉末が付着していない試験番号 5, 6 のステンレス鋼板は、何れも接触抵抗が高く、燃料電池用セパレータとして使用できなかった。

【0018】

表2：カーボン粉末を分散付着させた後、  
加熱処理したステンレス鋼基材の接触抵抗及び腐食減量

試験番号	鋼種記号	付着粉末	接触抵抗 mΩ · cm <sup>2</sup>	腐食減量 g/m <sup>2</sup>	区分
1	A	カーボンブラック	3.5	0.056	本発明例
2	B	〃	3.8	0.120	本発明例
3	A	黒鉛	3.4	0.056	本発明例
4	B	〃	3.7	0.120	本発明例
5	A	付着粉末なし	570	0.05	比較例
6	B	〃	180	0.08	比較例

腐食減量は、pH 2 希硫酸溶液 168 時間浸漬後の値である。

【0019】

【発明の効果】以上に説明したように、本発明のセパレータは、耐酸性の良好なフェライト系ステンレス鋼を基材とし、カーボン粉末を基材表面に分散付着させ、さらに熱処理をして拡散層を形成することによって導電性を改善している。そのため、多数のセルを積層した構造をもつ低温型燃料電池用のセパレータとして使用するとき、強酸性雰囲気においても腐食が少ない優れた耐久性

を示すと共に、多数のセルを積層したときに発生しがちな熱損失を抑制し、発電効率の高い燃料電池を形成することが可能になる。また、Ni を主成分としていない比較的安価なステンレス鋼製のセパレータであることから、材料コストや製造コスト等を下げ、生産性良く製造できる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】従来の固体高分子膜を電解質として使用した

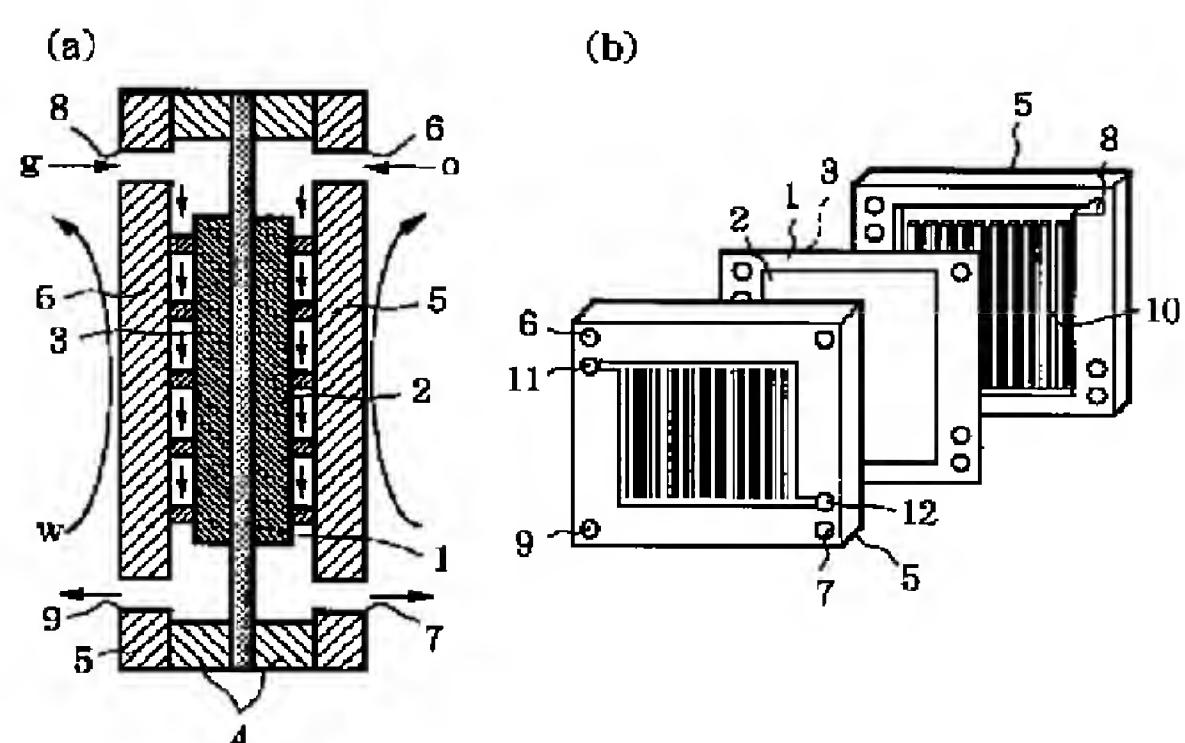
燃料電池の内部構造を説明する断面図 (a) 及び分解斜視図 (b)

【図 2】 黒鉛粉末を分散付着させたステンレス鋼基材 (a), 加熱処理で拡散層を生成させたステンレス鋼基材 (b), カーボンブラックの凝集物を分散付着させたステンレス鋼基材 (c) 及びカーボンブラックの凝集物と基材との間に拡散層を生成されたステンレス鋼基材 (d)

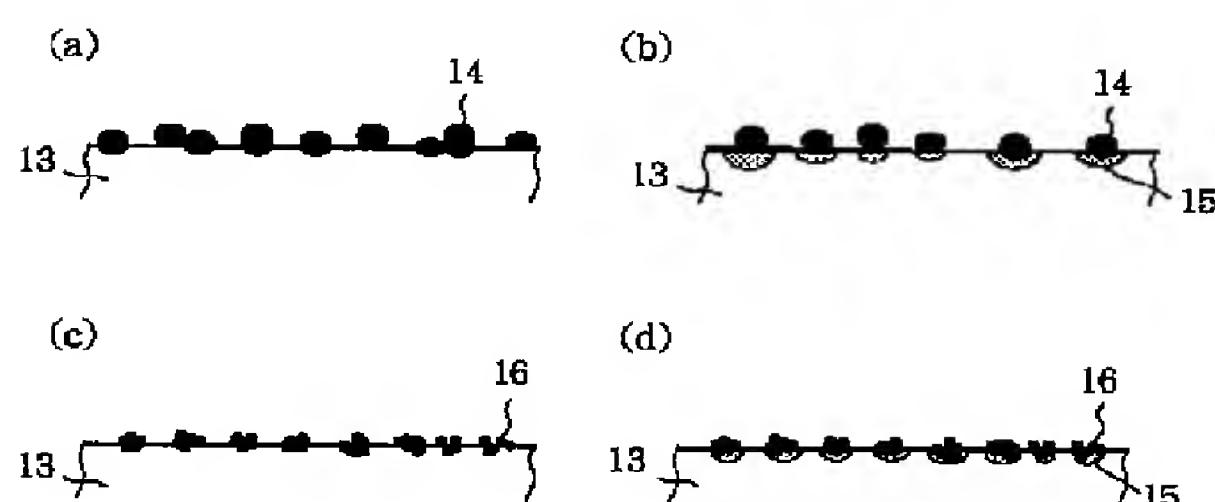
【符号の説明】

1 : 固体高分子膜 2 : 空気電極 3 : 水素電極  
 4 : ガスケット 5 : セパレータ 6 : 空気供給口 7 : 空気排出口  
 8 : 水素供給口 9 : 水素排出口 10 : 溝 11 : 給水口 1  
 2 : 排水口 13 : ステンレス鋼基材 14 : 黒鉛  
 粒子 15 : 拡散層 16 : カーボンブラックの凝  
 集物

【図 1】



【図 2】



フロントページの続き

(72) 発明者 守田 芳和  
 大阪府堺市石津西町 5 番地 日新製鋼株式  
 会社技術研究所内  
 (72) 発明者 斎藤 実  
 大阪府堺市石津西町 5 番地 日新製鋼株式  
 会社技術研究所内

(72) 発明者 高橋 剛  
 愛知県豊田市トヨタ町 1 番地 トヨタ自動  
 車株式会社内  
 (72) 発明者 八神 裕一  
 愛知県豊田市トヨタ町 1 番地 トヨタ自動  
 車株式会社内  
 F ターム(参考) 5H026 AA06 EE05 EE06 EE08